PCT WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales Büro
INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 7 : B01D 53/22, 71/02

A1

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/35561

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 22. Juni 2000 (22.06.00)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP99/09478

(22) Internationales Anmeldedatum: 3. Dezember 1999 (03.12.99)

(30) Prioritätsdaten:
198 57 590.4 14. Dezember 1998 (14.12.98) DE

(71) Anmelder *(für alle Bestimmungsstaaten ausser US)*: FRAUNHOFER–GESELLSCHAFT ZUR FÖRDERUNG DER ANGEWANDTEN FORSCHUNG E.V. [DE/DE]; Fraunhofer–Patentstelle, Herrn Lauermann, Leonrodstrasse 54, D–80636 München (DE).

(72) ~~Erfinder; und~~
(75) Erfinder/Anmelder *(nur für US)*: ADLER, Jörg [DE/DE]; Schloßstufen 2, D–01662 Meißen (DE). LENK, Reinhard [DE/DE]; Buchbergstrasse 12, D–02779 Großschönau (DE). RICHTER, Hans–Jürgen [DE/DE]; Bismarkstrasse 1, D–01257 Dresden (DE). STOCKMANN, Regina [DE/DE]; Cämmerswalder Strasse 35, D–01189 Dresden (DE). TOCHA, Daniel [DE/DE]; Rudolf–Leonhard–Strasse 6, D–01097 Dresden (DE). STROH, Norbert [DE/DE]; Ruhesteinweg 33, D–71106 Magstadt (DE). TUDYKA, Stefan [DE/DE]; Reichertshalde 103, D–71642 Ludwigsburg (DE).

(74) Anwalt: RAUSCHENBACH, Marion; PF 27 01 75, D–01172 Dresden (DE).

(81) Bestimmungsstaaten: US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

Veröffentlicht
Mit internationalem Recherchenbericht.

(54) Title: CERAMIC FLAT MEMBRANE AND METHOD FOR PRODUCING THE SAME

(54) Bezeichnung: KERAMISCHE FLACHMEMBRAN UND VERFAHREN ZU IHRER HERSTELLUNG

(57) Abstract

The invention relates to the area of ceramics and to a ceramic flat membrane which is configured as a multi–channel element. The aim of the invention is to provide a ceramic flat membrane with a larger effective membrane surface. To this end, the inventive ceramic flat membrane consists of at least two layers of at least two sub–layers of different porosity, at least one of these layers having a non–planar geometry. The two layers are joined to each other with at least spot joins and integral joins. The invention also provides a method for producing a flat membrane of this type. According to this method, suspensions are produced from at least two ceramic powders of different particle size. Two sub–layers are formed from said suspensions, then dried and joined to form one layer. At least one layer which is embossed and sintered or unsintered is joined to a non–embossed, similarly embossed, differently embossed or differently structured, sintered or unsintered layer with at least spot joins and integral joins to form a flat membrane.

(57) Zusammenfassung

Die Erfindung bezieht sich auf das Gebiet der Keramik und betrifft eine keramische Flachmembran als Multikanalelement. Die Aufgabe der Erfindung besteht darin, eine keramische Flachmembran anzugeben, bei der eine Erhöhung der wirksamen Membranfläche erreicht wird. Gelöst wird die Aufgabe durch eine keramische Flachmembran aus mindestens zwei Schichten aus mindestens zwei unterschiedlich porösen Teilschichten, wobei mindestens eine der Schichten eine nicht planare Geometrie aufweist und diese zwei Schichten mindestens punktuell und stoffschlüssig miteinander verbunden sind. Die Aufgabe wird weiterhin gelöst durch ein Verfahren, bei dem aus mindestens zwei keramischen Pulvern unterschiedlicher Partikelgröße Suspensionen hergestellt und daraus zwei Teilschichten geformt und getrocknet und zu einer Schicht verbunden werden, anschließend mindestens eine Schicht geprägt und gesintert oder ungesintert mindestens punktuell und stoffschlüssig mit einem nichtgeprägten, gleichartig geprägten, andersartig geprägten oder andersartig strukturierten, gesinterten oder ungesinterten Schicht zu einer Flachmembran verbunden wird.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien
AM	Armenien
AT	Österreich
AU	Australien
AZ	Aserbaidschan
BA	Bosnien-Herzegowina
BB	Barbados
BE	Belgien
BF	Burkina Faso
BG	Bulgarien
BJ	Benin
BR	Brasilien
BY	Belarus
CA	Kanada
CF	Zentralafrikanische Republik
CG	Kongo
CH	Schweiz
CI	Côte d'Ivoire
CM	Kamerun
CN	China
CU	Kuba
CZ	Tschechische Republik
DE	Deutschland
DK	Dänemark
EE	Estland
ES	Spanien
FI	Finnland
FR	Frankreich
GA	Gabun
GB	Vereinigtes Königreich
GE	Georgien
GH	Ghana
GN	Guinea
GR	Griechenland
HU	Ungarn
IE	Irland
IL	Israel
IS	Island
IT	Italien
JP	Japan
KE	Kenia
KG	Kirgisistan
KP	Demokratische Volksrepublik Korea
KR	Republik Korea
KZ	Kasachstan
LC	St. Lucia
LI	Liechtenstein
LK	Sri Lanka
LR	Liberia
LS	Lesotho
LT	Litauen
LU	Luxemburg
LV	Lettland
MC	Monaco
MD	Republik Moldau
MG	Madagaskar
MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien
ML	Mali
MN	Mongolei
MR	Mauretanien
MW	Malawi
MX	Mexiko
NE	Niger
NL	Niederlande
NO	Norwegen
NZ	Neuseeland
PL	Polen
PT	Portugal
RO	Rumänien
RU	Russische Föderation
SD	Sudan
SE	Schweden
SG	Singapur
SI	Slowenien
SK	Slowakei
SN	Senegal
SZ	Swasiland
TD	Tschad
TG	Togo
TJ	Tadschikistan
TM	Turkmenistan
TR	Türkei
TT	Trinidad und Tobago
UA	Ukraine
UG	Uganda
US	Vereinigte Staaten von Amerika
UZ	Usbekistan
VN	Vietnam
YU	Jugoslawien
ZW	Zimbabwe

Keramische Flachmembran und Verfahren zu ihrer Herstellung

Die Erfindung bezieht sich auf das Gebiet der Filter- und Separationstechnik und der Keramik und betrifft eine keramische Flachmembran beispielsweise in Form eines Multikanalelementes für den Einsatz in der Flüssigkeits- und Gasfiltration und ein Verfahren zu ihrer Herstellung. Derartige Multikanalelemente werden bevorzugt in Form von Filtermodulen, die aus mehreren Multikanalelementen bestehen, eingesetzt.

Keramische Membranen für Filtrationsanwendungen gibt es mit Flachgeometrie und Rohrgeometrie. Diese Membranen weisen dabei ein möglichst hohes Flächen- zu Volumenverhältnis auf. Bei Membranen in Rohrgeometrie sind sowohl Monokanal- als auch Multikanalelemente möglich. Bei rohrförmigen Multikanalelementen (z.B. 7 oder 19 Kanäle) wird im Vergleich zu Monokanalelementen ein deutlich höheres Flächen- zu Volumenverhältnis erreicht. Durch Erhöhung der Kanalzahl auf z.B. 37 kann die nutzbare Filtrationsfläche weiter erhöht werden. Bei konstantem Außendurchmesser des Rohres ist jedoch die Zahl der Kanäle nicht beliebig erhöhbar, da sonst die Wandstärken zu gering werden und somit die mechanische Stabilität nicht mehr ausreichend gewährleistet ist. Daneben wird mit zunehmender Kanalzahl die Permeatabführung der inneren Kanäle durch die Keramik nach außen erschwert. Für Rohrgeometrien kann auch durch Änderung der üblicherweise konzentrischen Kanal-Querschnittsformen in Kleeblatt- oder Schmetterlingsform das Flächen- zu Volumenverhältnis erhöht werden.

Die herkömmlichen rohrförmigen Mono- und Multikanalelemente werden durch Extrusion in einem Stück hergestellt.

Eine neue Technik zur Herstellung von Monokanalelementen, die eine sehr geringe Rauhigkeit aufweisen und sich daher gut für die Membranbeschichtung eignen, stellt das Zentrifugieren dar (Nijmeijer, A. u.a. Am. Ceram. Soc. Bull. 77(4), S. 95-98, 1998).

Die eigentliche Trennmembran wird in einem nachfolgenden Schritt, z.B. durch ein- oder mehrmaliges Benetzen des Rohres mit einer Suspension mit keramischen Pulvern oder mit einer Precursorlösung aufgebracht. Unabhängig von der Chemie und Zusammensetzung des Precursors befindet sich die Trennmembran auf der Innenseite des Rohrkanals bzw. der Rohrkanäle.

Neben den Membranen in Rohrgeometrie gibt es Flachmembranen. Derartige Flachmembranen sind in WO98/28060 A1, DE 36 12 825 A1 und DE 196 24 176 C2 angegeben. Alle diese Flachmembranen sind durch eine planare Oberfläche gekennzeichnet. Außerdem müssen sie bei der Flüssigfiltration sehr dünn sein, um einen ausreichenden Filtratfluß zu gewährleisten. Durch die relativ geringe mechanische Stabilität dünner keramischer Membranen ist eine poröse Abstützung erforderlich, deren Dicke mehr als das Hundertfache der Dicke der Membranschicht beträgt.

DE 43 35 122 A1 beschreibt eine keramische Flachmembran, die aus zwei Membranflachfolien besteht, die durch eine stoffgleiche, aber absolut dichte Distanzhalterung in Wellenform voneinander getrennt werden. Die Seite der Membran, welche von dem zu trennenden Medium (Feed) angeströmt wird, besitzt eine ebene, d.h. nicht strukturierte Oberfläche. Dagegen ist in DE 43 29 473 C1 eine Flachmembran beschrieben, deren Geometrie so gestaltet ist, dass an keiner Stelle der Membran Zugspannungen auftreten. Zu diesem Zweck sind auf der Filtratseite Rillen enthalten, die annähernd den Querschnitt eines Halbkreisbogens haben.

In der WO 90/15661 wird eine selbsttragende Keramikmembran, die aus zwei Schichten, aus einem groben und einem feinen Pulver bestehen, beschrieben. Die Herstellung erfolgt durch das Übereinandergießen der Schichten mittels Foliengießtechnik. Der so erzeugt support-layer-Verbund wird in einem Schritt gebrannt. Angegeben wird auch, dass die Membran im Grünzustand flexibel ist und geprägt werden kann (z.B. Kanäle).

In der US 5766290 ist ein keramischer Filter aus speziell strukturierten Platten (Zickzackmuster) beschrieben, die versetzt aufeinander gestapelt und verklebt werden, wobei sich hier parallele Kanäle ergeben. Die Platten haben eine

gleichförmige poröse Struktur und bestehen aus Bruchstücken von keramischen Fasern. Sie finden Anwendung als hochtemperatur- und druckstabiler Filter für Querstromfiltration von Gasen (Rauchgas, Erdgas).
Nachteilig ist die eingeschränkte geometrische Gestaltungsmöglichkeit und die gleichförmige poröse Struktur, die einer breiten Anwendung entgegensteht.

Die Nachteile der bisherigen Flachmembranen und auch der in Rohrgeometrien sind, dass sich die Membranflächen nicht beliebig erhöhen lassen und dass bei einer derartigen Erhöhung die mechanische Stabilität geringer wird.

Bekannte Membranen werden bekanntermaßen vorrangig aus Polymeren hergestellt. Keramische Membranen konnten sich aufgrund hoher Fertigungskosten trotz besserer Eigenschaften (höhere chemische, thermische und mechanische Festigkeit) bislang nicht durchsetzen.

Die bisherige Technologie zur Herstellung von keramischen Flachmembranen besteht aus folgenden Schritten:

1. Herstellung des Supportes
 - Mischen von eng fraktionierten Pulvern im Größenbereich einiger µm mit bekannten Formgebungshilfsmitteln,
 - Formgebung,
 - Sintern.

2. Herstellung einer Teilschicht auf dem Support
 - Suspensionsherstellung aus feinen, ebenfalls möglichst eng fraktionierten Pulvern mit Korngrößen, die kleiner sind als die des Supportes,
 - Beschichtung des Supportes durch Dipcoating,
 - Trocknen,
 - Sintern,

 mehrmalige Wiederholung der letzten drei Schritte

3. Herstellung einer weiteren Teilschicht auf der ersten Teilschicht
 - Suspensionsherstellung aus feinen, möglichst eng fraktionierten Pulvern mit Korngrößen, die kleiner sind als die der vorherig aufgebrachten Teilschicht, oder Solherstellung
 - Beschichten der ersten gesinterten Teilschicht durch Dipcoating,
 - Trocknen,
 - Sintern,

 mehrmalige Wiederholung der letzten drei Schritte

4. Fertigung der Module
 - Versiegeln der Endstücke (Abdichtung)
 - Montage

Aus dieser Darstellung ist ersichtlich, daß der hauptsächliche Nachteil des bekannten Herstellungsverfahrens die aufwendige Wiederholung der Aufbringung, Trocknung und Sinterung der Teilschichten ist. Diese Herstellungsteilschritte sind besonders kostenintensiv.

Es hat bereits Untersuchungen gegeben, dieses Herstellungsverfahren durch Integration der Beschichtung in den Formgebungsprozeß zu verbessern. Dies wurde speziell mit der Coextrusion versucht. Dabei werden strangförmigen Massen mit einem Kolbenextruder über einen Dorn extrudiert (DE 22 08 767 C1).
Die Untersuchungen sind aber nicht fortgesetzt und in der Praxis nicht angewandt worden. Die Herstellung von mehrschichtigen Elementen ist auf diese Art und Weise allerdings nicht möglich.

Die Aufgabe der Erfindung besteht darin, eine keramische Flachmembran anzugeben, bei der bei Beibehaltung der mechanischen Stabilität der Membranen eine Erhöhung der wirksamen Membranfläche und damit eine Verbesserung des Flächen- zu Volumenverhältnisses erreicht wird und diese Membranen durch ein kostengünstigeres Verfahren herstellbar sind.

Die Aufgabe wird durch die in den Ansprüchen angegebene Erfindung gelöst. Weiterbildungen sind Gegenstand der Unteransprüche.

Die erfindungsgemäße keramische Flachmembran ist aus mindestens zwei Schichten gleicher Dicke aufgebaut, wobei jede dieser Schichten aus wiederum mindestens zwei Teilschichten aufgebaut ist. Diese beiden Teilschichten können sich hinsichtlich der stofflichen Zusammensetzung und Struktur voneinander unterscheiden oder auch nicht. In jedem Fall unterscheiden sie sich hinsichtlich ihrer mittleren Porengröße. Vorteilhafterweise sind die grobporöseren Teilschichten in Richtung des Filtrates angeordnet.

Unter der mittleren Porengröße ist dabei die Größe zu verstehen, die alle mittleren Abmessungen (insbesondere Durchmesser, Radius, Querschnittsfläche, Volumen) der Poren und auch ihre mittlere Verteilung betrifft.

Die Teilschichten sind vorteilhafterweise miteinander verbunden. Die Schichten sind vorteilhafterweise miteinander verbunden.

Erfindungsgemäß weist mindestens eine der Schichten eine nicht planare Geometrie auf. Unter einer planaren Geometrie soll gemäß dieser Erfindung verstanden werden, daß die Oberflächen der Schichten eben oder im wesentlichen eben sind. Alle nicht ebenen oder im wesentlichen nicht ebenen Oberflächen von Schichten weisen somit eine nicht planare Geometrie auf. Durch die nicht planare Geometrie mindestens einer der Schichten entstehen in der erfindungsgemäßen keramischen Flachmembran Kanäle, die entweder das zu trennende Medium oder das Filtrat aufnehmen können.
Die Querschnitte dieser Kanäle können eine beliebige Geometrie aufweisen und sich auch über die Länge der Kanäle und auch über das Volumen der Flachmembran kontinuierlich oder diskontinuierlich verändern.

Die erfindungsgemäßen Flachmembranen weisen ein Mehrfaches an Membranfläche gegenüber der bei bekannten Flachmembranen möglichen Membranflächen auf. Die Membranfläche kann sechsmal größer sein als bei einem

Multikanalelement mit 19 Einzelkanälen. Es ist auch eine deutlich höhere mechanische Stabilität gegenüber herkömmlichen Flachmembranen erreicht.

Ein weiterer Vorteil ist, dass durch die spezielle Form der erfindungsgemäßen Flachmembran beim Überströmen des zu filternden Mediums Turbulenzen und Strudel erzeugt werden, so dass die Bildung einer Deckschicht aus Schmutz- und anderen Partikeln („Fouling") stark eingeschränkt ist. Ebenfalls wird eine Ablösung einer solchen Schicht während der Filtration begünstigt.
Damit ist eine erhöhte Permeationsleistung und eine verlängerte Standzeit der Flachmembranen möglich.

Durch das erfindungsgemäße Verfahren wird die Herstellung der erfindungsgemäßen keramischen Flachmembranen möglich.

Es werden mindestens zwei Schichten hergestellt, die aus mindestens zwei Teilschichten aufgebaut sind. Diese Teilschichten werden beispielsweise als Folie gegossen, wobei erst die eine Teilschicht als Folie gegossen und ganz oder teilweise getrocknet wird und anschließend auf diese Folie die zweite Folie aus dem Material für die zweite Teilschicht gegossen und getrocknet wird. Der so entstandene Schichtverbund wird als eine Schicht beispielsweise mit einer planaren Geometrie belassen und als eine zweite Schicht mit einer längsorientierten Struktur geprägt.
Die beiden Teilschichten der beiden Schichten können gleiche oder unterschiedliche Zusammensetzung und/oder Struktur aufweisen. In jedem Fall haben sie aber eine unterschiedliche mittlere Porengröße.
Nach der Herstellung der beiden Schichten werden diese jeweils mit den gleichporösen Schichten aneinander gelegt und mindestens punktuell kraft- und/oder stoffschlüssig miteinander verbunden. Dadurch entsteht eine keramische Flachmembran, die ein Teilelement eines Modules sein kann. Diese Flachmembran wird dann gesintert.
Es ist jedoch erfindungsgemäß auch möglich, daß die beiden Schichten separat gesintert und dann erst miteinander verbunden werden.

Im weiteren wird die Erfindung an mehreren Ausführungsbeispielen näher erläutert.

Beispiel 1

Herstellung der Suspension 1

100 g Siliciumcarbidpulver mit einem mittleren Partikeldurchmesser von 45 µm und 15 g Borosilikatglaspulver werden in einer Lösung aus 12,9 g Polyvinylalkohol, 5,3 g Glycerin und 0,5 g Nonanol als Entschäumer in 65 g Wasser dispergiert. Die Dispergierung erfolgt durch 5stündiges Rühren in einem Becherglas mittels Propellerrührer.

Herstellung der Suspension 2

100 g Siliciumcarbidpulver mit einem mittleren Partikeldurchmesser von 2 µm und 20 g Borosilikatglaspulver werden in einer Lösung aus 15 g Polyvinylalkohol, 6,2 g Glycerin, 0,05 g Natriumpolycarbonat als Dispergiermittel und 0,5 g Nonanol als Entschäumer in 65 g Wasser dispergiert. Die Dispergierung erfolgt durch 6stündiges Rühren in einem Becherglas mittels Propellerrührer.

Herstellung der Schicht 1

Die Suspension 1 wird auf einer Foliengießanlage zu einer Folie vergossen. Die Gießhöhe über der ebenen Unterlage beträgt 0,8 mm. Nach einer Trocknungszeit von 4 h bei Raumtemperatur wird über diese Folie die Suspension 2 mit einer Gießhöhe von 0,1 mm gegossen. Nach einer Trocknungszeit von 6 h bei Raumtemperatur wird aus zwei Teilschichten/Teilfolien eine Schicht/Folie erhalten, die dann von der Unterlage entfernt wird.

Herstellung der Schicht 2

Die Herstellung der Schicht 2 erfolgt analog dem Verfahren zur Herstellung der Schicht 1.

Nach dem Vorliegen der beiden Schichten im getrockneten Zustand werden aus der Schicht 1 Quadrate der Abmessungen 100 x 100 mm^2 geschnitten. Die Schicht 2 wird in Rechtecke der Abmessungen 100 x 134,5 mm^2 geschnitten. Die Schichtstücke mit den größeren Abmessungen werden mittels Transport durch zwei gegenläufige zylindrische Stempel mit trapezförmig gezähnter Oberflächenstruktur geprägt und erlangen dadurch die Abmessungen 100 x 100 mm^2. Anschließend

werden die beiden Schichten, die eine geprägte und die eine ungeprägte, miteinander verbunden, wobei die aus der Suspension 1 hergestellten Teilschichten einander zugewandt sind.

Durch dieses Verfahren ist eine Flachmembran mit Kanälen entstanden, die einen trapezförmigen Querschnitt aufweisen.

Der Flachmembran-Grünkörper wird bei 950 °C an Luft gesintert, wodurch die Flachmembran ihre endgültigen Eigenschaften erhält.

Beispiel 2

Herstellung der Suspension 1

65 g Siliciumcarbidpulver mit einem mittleren Partikeldurchmesser von 20 µm und 11,5 g Borosilikatglaspulver werden in einer Lösung aus 9,8 g Polyvinylalkohol und 9,8 g Polyethylenglykol in 42 g Wasser dispergiert. Die Dispergierung erfolgt durch 5stündiges Rühren in einem Becherglas mittels Propellerrührer. Anschließend wird die Suspension in einer Vakuumbox bei einem Druck von 12 Pa entgast.

Herstellung der Suspension 2

50 g Siliciumcarbidpulver mit einem mittleren Partikeldurchmesser von 1 µm und 7,2 g Borosilikatglaspulver werden in einer Lösung aus 6,5 g Polyvinylalkohol, 6,5 g Polyethylenglykol und 0,1 g Natriumpolycarbonat als Dispergiermittel in 32 g Wasser dispergiert. Die Dispergierung erfolgt durch gleichmäßiges Bewegen in einem geschlossenen Gefäß auf einem Rollenstuhl. In dem Gefäß befinden sich außer der Suspension 50 Achatkugeln mit einem Durchmesser von 10 mm. Nach der 2stündigen Dispergierung wird die Suspension über ein Sieb abgegossen und danach durch Ultraschallanwendung entgast.

Herstellung der Schicht 1

Die Suspension 1 wird auf einer Foliengießanlage zu einer Folie vergossen. Die Gießhöhe über der ebenen Unterlage beträgt 0,6 mm. Nach einer Trocknungszeit von 3 h bei Raumtemperatur wird über diese Folie die Suspension 2 mit einer Gießhöhe von 0,09 mm gegossen. Nach einer Trocknungszeit von 6 h bei

Raumtemperatur wird die so aus zwei Teilschichten/Teilfolien erhaltene Schicht/Folie von der Unterlage entfernt.

Herstellung der Schicht 2

Die Herstellung der Schicht 2 erfolgt analog dem Verfahren zur Herstellung der Schicht 1.

Nach dem Vorliegen der beiden Schichten im getrockneten Zustand werden aus beiden Quadrate der Abmessungen 100 x 100 mm^2 geschnitten. Die Stücke der Schicht 2 werden in eine Form gelegt, die aus einem Rahmen 100 x 100 mm^2 und aus zwei Preßstempeln mit einer gewellten Oberfläche besteht, und durch Anwendung eines Druckes von 2 MPa verformt. Anschließend werden die beiden Schichten, die eine geprägte und die eine ungeprägte, miteinander verbunden, wobei die aus der Suspension 1 hergestellten Teilschichten einander zugewandt sind.
Durch dieses Verfahren ist eine Flachmembran mit Kanälen entstanden, die einen wellenförmigen Querschnitt aufweisen.
Der Flachmembran-Grünkörper wird bei 950 °C an Luft gesintert, wodurch die Flachmembran ihre endgültigen Eigenschaften erhält.

Patentansprüche

1. Keramische Flachmembran aus mindesten zwei Schichten gleicher Dicke, die aus mindestens zwei unterschiedlich porösen Teilschichten aufgebaut sind, wobei mindestens eine der Schichten eine nicht planare Geometrie aufweist und diese zwei Schichten mindestens punktuell und stoffschlüssig miteinander verbunden sind und dadurch die Flachmembranen Kanäle aufweist, deren Querschnitte beliebige Geometrien aufweisen und in Form und Abmessungen über die Länge der Kanäle veränderbar sind.

2. Keramische Flachmembran nach Anspruch 1, bei der die mittlere Porengröße der Teilschichten in Richtung des Filtrates hin zunimmt.

3. Keramische Flachmembran nach Anspruch 1, bei der die eine der zwei Schichten eine planare und die andere eine gewellte Geometrie aufweist.

4. Keramische Flachmembran nach Anspruch 1, bei der beide Schichten eine gewellte Geometrie aufweisen.

5. Keramische Flachmembran nach Anspruch 1, bei der die Kanäle eine längsorientierte Struktur aufweisen.

6. Keramische Flachmembran nach Anspruch 1, bei der die Querschnitte der Kanäle dreieckig, halbkreisförmig, wellenförmig oder trapezförmig ausgebildet sind.

7. Keramische Flachmembran nach Anspruch 1, bei der die Zahl der längsorientierten Kanäle zwischen 2 und 500 beträgt.

8. Keramische Flachmembran nach Anspruch 1, bei der das Verhältnis der Dicke der grobporöseren Teilschicht zur Dicke der feinporöseren Teilschicht 5 bis 10 beträgt.

9. Keramische Flachmembran nach Anspruch 1, bei der das Verhältnis der Dicke einer feinporöseren Teilschicht zur Dicke einer weiteren noch feinporöseren Teilschicht 1 bis 10 beträgt.

10. Keramische Flachmembran nach Anspruch 1, bei der der mittlere Porendurchmesser der grobporöseren Teilschicht das 2 bis 10fache des mittleren Porendurchmessers der feinporöseren Teilschicht beträgt.

11. Keramische Flachmembran nach Anspruch 1, bei der der mittlere Porendurchmesser einer feinporöseren Teilschicht das 2 bis 100fache des mittleren Porendurchmessers einer weiteren noch feinporöseren Teilschicht beträgt.

12. Keramische Flachmembran nach Anspruch 1, bei der der mittlere Partikeldurchmesser der grobporöseren Teilschicht das 2 bis 10fache des mittleren Partikeldurchmessers der feinporöseren Teilschicht beträgt.

13. Keramische Flachmembran nach Anspruch 1, bei der der mittlere Partikeldurchmesser einer feinporöseren Teilschicht das 2 bis 100fache des mittleren Partikeldurchmessers einer weiteren noch feinporöseren Teilschicht beträgt.

14. Keramische Flachmembran nach Anspruch 1, bei der wenigstens eine der Teilschichten eine dichte oder nanoporöse anorganische Schicht aufweist.

15. Keramische Flachmembran nach Anspruch 14, bei der die anorganische Schicht eine metallische und/oder keramische Schicht ist.

16. Keramische Flachmembran nach Anspruch 14, bei der die dichte oder nanoporöse Schicht auf die feinporöseste Teilschicht aufgebracht ist.

17. Keramische Flachmembran nach Anspruch 1, bei der einer oder mehrere oder jeder Kanal eine andere Querschnittsgeometrie aufweist.

18. Keramische Flachmembran nach Anspruch 1, bei der die Kanalquerschnittsgeometrien sich periodisch wiederholen.

19. Keramische Flachmembran nach Anspruch 1, bei der einzelne oder alle Kanäle und/oder die gesamte Flachmembran eine in sich verdrehte Form aufweisen.

20. Keramische Flachmembran nach Anspruch 1, bei der die mindestens zwei Schichten aus mindestens zwei miteinander laminierten Teilschichten bestehen.

21. Verfahren zur Herstellung von keramischen Flachmembranen nach einem der Ansprüche 1 bis 16, bei dem aus mindestens zwei keramischen Pulvern gleicher oder unterschiedlicher Zusammensetzung aber unterschiedlicher Partikelgröße oder aus mindestens einem keramischen Pulver und mindestens einer Lösung, die die Vorstufen eines keramischen Materials enthält, unter Zusatz bekannter Additive, Sinterhilfsmittel, Formgebungshilfsmittel, Bindemittel, Dispergierhilfsmittel keramische Suspensionen hergestellt werden, wobei die Partikelgröße der Zusätze nicht größer ist als die größte Partikelgröße der keramischen Pulver, aus einer der Suspensionen mindestens eine Teilschicht geformt und dann die Dispersionsflüssigkeit ganz oder teilweise entfernt wird, danach eine zweite Teilschicht aus der anderen Suspension oder Lösung geformt und die Dispersionsflüssigkeit oder das Lösungsmittel ganz oder teilweise entfernt wird, wobei diese mindestens zwei Teilschichten übereinandergelegt und/oder miteinander zu einer Schicht verbunden werden, anschließend mindestens eine derartige Schicht geprägt und gesintert oder ungesintert mindestens punktuell und stoffschlüssig mit einem nichtgeprägten, gleichartig geprägten, andersartig geprägten oder andersartig strukturierten, gesinterten oder ungesinterten Schicht zu einer Flachmembran verbunden wird, wobei Kanäle mit einer beliebig geformten Querschnittsgeometrie hergestellt werden, und anschließend eine Sinterung erfolgt, sofern noch nicht alle Membranbestandteile gesintert sind.

22. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem als keramische Pulver oxidische oder nichtoxidische Pulver oder Mischungen dieser Pulver eingesetzt werden.

23. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem als keramische Pulver Siliciumcarbid oder Aluminiumoxid oder Zirkonoxid eingesetzt werden.

24. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem als Dispersionsflüssigkeit Wasser eingesetzt wird.

25. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem als Bindemittel ein Gemisch aus mindestens Polyvinylalkohol und mindestens einer thermoplastischen Substanz, wie Stearinsäure, Paraffin, eingesetzt wird.

26. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem als Sinteradditiv ein Glas eingesetzt wird.

27. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem als Lösung, die die Vorstufen eines keramischen Materials enthält, ein Sol eingesetzt wird.

28. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem die Formung der Teilschichten durch Foliengießen erfolgt.

29. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem nach dem Gießen einer Folie und der Trocknung dieser Folie auf diese eine weiter Folie gegossen wird.

30. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem die Prägung und Formgebung einer Schicht simultan beim Aufbringen dieser Teilschicht auf die zweite Teilschicht durchgeführt wird.

31. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem das Verhältnis der Spaltbreite einer schlitzartigen Öffnung für das Gießen einer ersten Folie zur Spaltbreite einer schlitzartigen Öffnung für das Gießen einer zweiten Folie darauf 0,1 bis 0,5 beträgt und dieses Verhältnis auch für das Gießen weiterer Folien gilt.

32. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem das Verhältnis des mittleren Partikeldurchmessers einer feinkörnigeren Suspension zum mittleren Partikeldurchmesser einer grobkörnigern Suspension 0,1 bis 0,5 beträgt und dieses Verhältnis auch für weitere Suspensionen gilt.

33. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem die Schichtherstellung kontinuierlich aus einem unbeweglichen Behälter auf ein bewegtes Trägerband erfolgt.

34. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem die Schichtherstellung diskontinuierlich aus einem beweglichen Behälter auf eine unbewegliche Unterlage erfolgt, wobei die unbewegliche Unterlage eine Platte oder eine auf einer Platte fixierte Trägerfolie ist.

35. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem zur Schichtherstellung eine Platte oder ein Trägerband eingesetzt werden, die gewellt, gezackt oder strukturiert sind.

36. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem das Prägen kontinuierlich radial durch zylindrische Stempel mit einer gekrümmten Negativkontur erfolgt.

37. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem das Prägen diskontinuierlich uniaxial durch flächige Stempel mit einer ebenen Negativkontur erfolgt.

38. Verfahren nach Anspruch 21, bei der jeweils zwei gegenüberliegende strukturierte Stempel mit der Negativkontur der jeweils beiden Flächen der zu prägenden Schichten eingesetzt werden, wobei der Abstand zwischen den Stempeln und der Anpreßdruck variiert werden.

39. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem die Schicht(en) vor und/oder während und/oder nach dem Prägen erwärmt oder gekühlt werden.

40. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem die Schicht(en) vor und/oder während und/oder nach dem Prägen befeuchtet oder getrocknet werden.

41. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem die Herstellung der Flachmembran aus mindestens einer geprägten Schicht und einer nichtgeprägten, gleichartig geprägten, andersartig geprägten oder andersartig strukturierten Schicht diskontinuierlich uniaxial durch zwei flächige Stempel, wobei einer die ebene Negativkontur der Prägestruktur aufweist, erfolgt.

42. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem die Herstellung der Flachmembran aus mindestens einer geprägten Schicht und einer nichtgeprägten, gleichartig geprägten, andersartig geprägten oder andersartig strukturierten Schicht kontinuierlich radial durch zwei zylindrische Stempel, wobei jeweils einer die gekrümmte Negativkontur der jeweiligen Prägestruktur aufweist, erfolgt.

43. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem zur Herstellung der mindestens punktuell und stoffschlüssigen Verbindung zwischen zwei Schichten jeweils zwei gegenüberliegende Stempel mit der Negativkontur der jeweils beiden Flächen der aus geprägten und ungeprägten Schichten entstandenen Flachmembran eingesetzt werden, wobei der Abstand zwischen den Stempeln und der Anpreßdruck variiert werden.

44. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem die geprägten und/oder ungeprägten Schichten vor und/oder während und/oder nach dem Verbinden mit anderen geprägten und/oder ungeprägten Schichten erwärmt oder gekühlt und/oder befeuchtet oder getrocknet wird.

45. Verfahren nach Anspruch 21, bei dem die Prägestempel aus einem Material mit elastischen Eigenschaften besteht.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inter onal Application No
PCT/EP 99/09478

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 B01D53/22 B01D71/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 7 B01D F01N

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 58 030306 A (TDK ELECTRONICS) 22 February 1983 (1983-02-22) figures	1
A	EP 0 574 012 A (SHIMADZU) 15 December 1993 (1993-12-15) figures	1
A	US 3 785 781 A (G.L. HERVERT) 15 January 1974 (1974-01-15) figures	1

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
24 March 2000	04/04/2000

Name and mailing address of the ISA	Authorized officer
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax (+31-70) 340-3016	Bogaerts, M

1

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1992)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Inte ional Application No
PCT/EP 99/09478

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
JP 58030306 A	22-02-1983	JP 1649195 C	13-03-1992
		JP 3017528 B	08-03-1991
EP 574012 A	15-12-1993	DE 69322814 D	11-02-1999
		DE 69322814 T	26-08-1999
		JP 6055034 A	01-03-1994
		US 5569455 A	29-10-1996
US 3785781 A	15-01-1974	NONE	

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP 99/09478

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 B01D53/22 B01D71/02

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 B01D F01N

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der Internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	JP 58 030306 A (TDK ELECTRONICS) 22. Februar 1983 (1983-02-22) Abbildungen	1
A	EP 0 574 012 A (SHIMADZU) 15. Dezember 1993 (1993-12-15) Abbildungen	1
A	US 3 785 781 A (G.L. HERVERT) 15. Januar 1974 (1974-01-15) Abbildungen	1

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :
"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem Internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
"P" Veröffentlichung, die vor dem Internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem Internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden
"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der Internationalen Recherche	Absendedatum des Internationalen Recherchenberichts
24. März 2000	04/04/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde	Bevollmächtigter Bediensteter
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Bogaerts, M

1

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internes Aktenzeichen
PCT/EP 99/09478

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
JP 58030306 A	22-02-1983	JP 1649195 C	13-03-1992
		JP 3017528 B	08-03-1991
EP 574012 A	15-12-1993	DE 69322814 D	11-02-1999
		DE 69322814 T	26-08-1999
		JP 6055034 A	01-03-1994
		US 5569455 A	29-10-1996
US 3785781 A	15-01-1974	KEINE	